

**BREVET D'INVENTION**

P.V. n° 917.447

Classification internationale

N° 1.345.823

F 25 j



**Procédé pour refroidir les gaz, notamment l'hydrogène et l'hélium, à de très basses températures.**

Société dite : PETROCARBON DEVELOPMENTS LIMITED résidant en Grande-Bretagne.

Demandé le 4 décembre 1962, à 14<sup>h</sup> 10<sup>m</sup>, à Paris.

Délivré par arrêté du 4 novembre 1963.

(Bulletin officiel de la Propriété industrielle, n° 50 de 1963.)

Cette invention est relative aux procédés pour refroidir des gaz jusqu'à des températures très basses, c'est-à-dire jusqu'à des températures nettement inférieures à 70 °K; elle concerne en premier lieu la liquéfaction des gaz tels que l'hydrogène et l'hélium, qui ont une température de liquéfaction très inférieure à 70 °K.

Dans le procédé connu de liquéfaction de l'hydrogène, on commence par refroidir l'hydrogène à 170 atmosphères avec de l'azote liquide bouillant à la pression atmosphérique, puis avec de l'azote liquide sous vide, jusqu'à une température de 65 °K, on le détend ensuite à 1,5 atmosphères, de sorte que 25 % environ de l'hydrogène sont liquéfiés, par application de l'effet Joule-Thomson. En raison des pressions élevées qui sont mises en jeu et pour d'autres raisons encore, ce procédé ne convient pas à l'échelle industrielle.

L'invention crée un procédé grâce auquel un gaz sous une pression modérément élevée, c'est-à-dire sous une pression ne dépassant pas sensiblement 30 atmosphères, peut être refroidi jusqu'à sa température de liquéfaction ou jusqu'à une température à laquelle une liquéfaction partielle peut s'opérer par détente, par application de l'effet Joule-Thomson.

L'invention est matérialisée dans un procédé de refroidissement d'un gaz jusqu'à une température nettement inférieure à 70 °K consistant à faire passer le gaz, sous une pression modérément élevée et à une température de l'ordre de 65 à 70 °K, à travers une série de zones de refroidissement, et à refroidir ce gaz dans chaque zone à l'aide d'un courant séparé d'un gaz de refroidissement ayant un point d'ébullition non supérieur à celui du gaz en cours de refroidissement et qui a été finalement refroidi jusqu'à la température requise par détente à travers une turbine. La température du gaz de refroidissement qui s'échappe de chaque zone est inférieure à celle du gaz qui pénètre dans la turbine associée avec cette zone. Normalement, le gaz

de refroidissement détendu à travers les turbines subit cette détente à partir d'une pression inférieure à celle du gaz en cours de refroidissement. Le gaz de refroidissement destiné à la seconde zone et à chacune des zones de refroidissement suivantes est refroidi de préférence par le gaz de refroidissement qui s'échappe de cette zone de refroidissement avant sa détente à travers la turbine.

Le refroidissement du gaz jusqu'à une température comprise entre 65° et 70 °K peut s'effectuer de la manière connue, par exemple par une réfrigération par l'ammoniac, suivie d'un refroidissement à l'aide d'azote.

Le procédé tel que le prévoit l'invention peut être appliqué à la liquéfaction de l'hydrogène, en utilisant de l'hydrogène ou de l'hélium comme gaz de refroidissement ou pour liquéfier l'hélium en utilisant l'hélium comme gaz de refroidissement.

Dans l'application du procédé à la liquéfaction de l'hydrogène, la charge d'hydrogène peut se trouver rationnellement à une température de 65° à 70 °K et sous une pression allant de 2 à 20 atmosphères. L'hydrogène peut être liquéfié par refroidissement jusqu'à sa température de liquéfaction, à condition que sa pression soit inférieure à la pression critique, ou jusqu'à une température à laquelle l'effet Joule-Thomson peut trouver une application heureuse, la liquéfaction d'une partie du gaz étant effectuée par détente.

Dans l'application du procédé à la liquéfaction de l'hélium, la charge d'hélium peut se trouver rationnellement à une température de 65° à 70 °K et sous une pression comprise entre 5 et 30 atmosphères. En raison de la température critique très faible et de la pression de l'hélium, le stade final du refroidissement et de la liquéfaction s'opère par détente, par application de l'effet Joule-Thomson.

Dans le procédé de liquéfaction de l'hydrogène dans lequel le refroidissement jusqu'à la température de liquéfaction ou jusqu'à une température

inférieure est effectué par réfrigération, l'hydrogène, qui se trouve à une pression ne dépassant pas 12,5 atmosphères, et rationnellement égale à 8 atmosphères, et à une température de 70 °K, peut être refroidi en 7 étages dans des échangeurs de chaleur jusqu'à 26 °K, température à laquelle il est liquide, sa température de liquéfaction étant de 30 °K, puis sous-refroidi jusqu'à 22 °K dans un huitième étage, le liquide à une température de 22 °K pouvant alors être détendu jusqu'à 1,5 atmosphère. Chaque étage abaisse la température d'une quantité variant de 10 °K à 4 °K et, en partant de 70 °K, les étages successifs de refroidissement abaissent la température jusqu'à 60 °K, 52 °K, 46 °K, 40 °K, 35 °K, 30 °K, 26 °K et 22 °K respectivement.

Dans chaque étage, le refroidissement peut être effectué à l'aide d'hydrogène à titre de gaz de refroidissement, refroidi par détente de 2,5 atmosphères à 1 ou 1,5 atmosphère, par passage à travers une turbine, jusqu'à une température qui est approximativement de 2 °K inférieure à celle à laquelle le refroidissement doit être effectué dans l'étage intéressé, le gaz de refroidissement s'échappant de l'échangeur de chaleur de chaque étage à une température inférieure à celle à laquelle le gaz pénètre dans la turbine associée avec cet étage. Dans chaque étage de refroidissement, sauf le premier, le gaz de refroidissement pénétrant dans la turbine traverse un pré-refroidisseur qui est lui-même refroidi par le gaz de refroidissement s'échappant de l'échangeur de chaleur de cet étage particulier. La charge principale de gaz de refroidissement est fournie à une température approximative de 71 °K et sous une pression de 3,5 atmosphères; elle est ensuite détendue jusqu'à 2,5 atmosphères par passage à travers une turbine, et refroidie ainsi à 67,5 °K. Le courant de refroidissement à 67,5 °K est amené en parallèle à tous les étages de refroidissement, de sorte qu'il est envoyé à la turbine du premier étage, dans laquelle il se détend à 1-1,5 atmosphère, et aux pré-refroidisseurs de chacun des étages successifs. Le gaz de retour qui s'échappe du premier échangeur de chaleur et de chacun des pré-refroidisseurs à une température égale à 66 °K est recueilli et envoyé à travers un échangeur de chaleur au compresseur dans lequel il est recomprimé à 3,5 atmosphères. Il est ensuite ramené, par le dernier échangeur de chaleur mentionné, dans lequel il est refroidi jusqu'à environ 71 °K, au système de refroidissement.

Suivant la variante de réalisation du procédé selon laquelle de l'hydrogène gazeux est refroidi jusqu'à 35 °K, puis partiellement liquéfié par détente, les cinq premiers étages de refroidissement de 70 °K jusqu'à 35 °K sont semblables à ceux décrits dans ce qui précède, bien que l'hydrogène à refroidir puisse se trouver avantageusement à une pression plus élevée, rationnellement à 16 atmos-

phères. L'hydrogène à 35 °K peut alors être envoyé à travers un autre échangeur de chaleur puis au récipient de détente, dans lequel il se détend jusqu'à 1,5 atmosphère et est partiellement liquéfié. La partie non liquéfiée est renvoyée comme fluide de refroidissement à travers l'échangeur de chaleur mentionné en dernier lieu, puis en série à travers les échangeurs de chaleur des étages de refroidissement 5 à 1 et également à travers les systèmes de réfrigération par l'azote et l'ammoniac employés pour assurer le refroidissement jusqu'à 70 °K. 41,5 % environ de la charge d'hydrogène envoyée dans le système sont liquéfiés lors de la détente dans les conditions mentionnées dans ce qui précède. Une notable proportion de l'énergie employée dans ce procédé est récupérée à partir des turbines prévues dans les étages de refroidissement.

Dans la liquéfaction de l'hydrogène, l'hélium peut être employé comme gaz de refroidissement, le cycle opératoire étant modifié de façon appropriée. C'est ainsi que l'hydrogène à une pression de 10 atmosphères et à une température de 70 °K peut être refroidi à l'aide d'hélium, en trois étages, jusqu'à 22 °K, les étages successifs abaissant la température jusqu'à 47 °K, 31,3 °K et 22 °K. Le gaz de refroidissement constitué par de l'hélium se trouve à 10 atmosphères et est refroidi depuis la température ambiante jusqu'à 74 °K par le courant de gaz de refroidissement en retour; il passe ensuite à travers une turbine dans laquelle il subit une détente de 10 à 7 atmosphères et est refroidi à une température de 70 °K. Le gaz de refroidissement est envoyé à chacun des trois étages de refroidissement, dans chacun desquels il est finalement refroidi par détente de 7 à 1,2 atmosphère, à travers une turbine jusqu'à une température qui est approximativement de 1 °K inférieure à celle à laquelle le courant d'hydrogène doit être refroidi dans l'étage intéressé. Dans le second et le troisième étages, l'hélium est préalablement refroidi, avant de pénétrer dans la turbine, par passage à travers un échangeur de chaleur lui-même refroidi par l'hélium de refroidissement revenant de l'étage de refroidissement correspondant.

Dans l'application du procédé, objet de l'invention, à la liquéfaction de l'hélium par utilisation d'hélium comme fluide de refroidissement, l'hélium à une pression modérément élevée, n'excédant pas sensiblement 30 atmosphères, et à une température de l'ordre de 65° à 70 °K, peut être refroidi par le procédé tel que le prévoit l'invention jusqu'à ce qu'il atteigne une température égale par exemple à 15 °K, à partir de laquelle il peut être refroidi par les gaz de retour, dans un échangeur de chaleur final, jusqu'à une température à laquelle l'effet Joule-Thomson peut avantageusement trouver son application, la liquéfaction d'une partie de l'hélium s'effectuant par détente, le reste de

l'hélium étant renvoyé à travers les échangeurs de chaleur terminaux et les échangeurs de chaleur précédents.

Grâce à ce procédé, le courant d'hélium devant être liquéfié, qui peut avantageusement se trouver sous une pression égale à 20 atmosphères et qui a été refroidi de la manière connue jusqu'à 70 °K par réfrigération à l'aide d'ammoniac et d'azote, peut être refroidi en cinq étages, dans des échangeurs de chaleur, jusqu'à 15 °K; il passe ensuite à travers un autre échangeur de chaleur, dans lequel il est refroidi par le gaz en retour jusqu'à 7 °K, puis à travers une vanne à effet Joule-Thomson, où la pression tombe à 1,5 atmosphère environ, 11 % du courant de gaz étant liquéfiés. Le reste de ce courant de gaz est renvoyé à travers la totalité des échangeurs de chaleur et des étages de réfrigération par ammoniac et l'azote jusqu'au compresseur. Le courant de refroidissement d'hélium sous une pression égale à 10 atmosphères est refroidi depuis la température ambiante jusqu'à 74 °K dans un échangeur de chaleur, par le courant de gaz de refroidissement qui revient des cinq étages de refroidissement; il passe ensuite à travers une turbine pour subir une détente de 10 à 7 atmosphères et y être refroidi jusqu'à 70 °K. Le gaz de refroidissement est envoyé à chacun des cinq étages de refroidissement. Chaque étage réduit la température du courant d'hélium en cours de refroidissement d'une quantité variant de 23 °K à 2,5 °K et, en partant de 70 °K, les étages de refroidissement successifs abaissent la température jusqu'à 47 °K, 32,5 °K, 17,5 °K et 15 °K. Dans chaque étage, le refroidissement est obtenu par détente de l'hélium gazeux de 7 atmosphères à 1,2 atmosphère, par passage à travers une turbine, jusqu'à une température qui est inférieure d'environ 1 °K à celle à laquelle le refroidissement du courant d'hélium doit se dérouler dans cet étage. Dans chaque étage de refroidissement, sauf le premier, le gaz de refroidissement pénétrant dans la turbine est envoyé à travers un échangeur de chaleur refroidi par le gaz qui s'échappe de l'échangeur de chaleur de cet étage.

Le procédé de liquéfaction de l'hydrogène et de l'hélium tel que le prévoit l'invention est illustré schématiquement à titre d'exemple par les dessins annexés, dans lesquels :

La figure 1 met en évidence le procédé dans son application au refroidissement de l'hydrogène par utilisation de l'hydrogène comme agent de refroidissement, jusqu'à la température de liquéfaction;

La figure 2 est une vue mettant en évidence l'application du procédé au refroidissement de l'hydrogène par utilisation d'hydrogène comme fluide de refroidissement, en abaissant la température jusqu'à 35 °K par réfrigération, cette opération étant suivie d'un autre refroidissement et d'une liqué-

faction par détente en utilisant l'effet Joule-Thomson;

La figure 3 est une vue mettant en évidence le procédé dans son application au refroidissement de l'hélium par utilisation d'hélium comme agent de refroidissement, en descendant jusqu'à 15 °K par réfrigération, puis en refroidissant jusqu'à 7 °K et en liquéfiant par détente par utilisation de l'effet Joule-Thomson;

La figure 4 représente l'application du procédé au refroidissement de l'hydrogène par utilisation d'hélium comme agent de refroidissement, jusqu'à la température de liquéfaction.

Sur la figure 1, 9 et 10 représentent les étages de réfrigération préliminaires dans lesquels de l'ammoniac et de l'azote sont utilisés respectivement pour refroidir l'hydrogène, à une pression de 8 atmosphères, jusqu'à 70 °K. 11, 12, 13, 14, 15, 16 et 17 désignent les échangeurs de chaleur dans lesquels un nouveau refroidissement est effectué par étages jusqu'à 60 °K, 52 °K, 46 °K, 40 °K, 35 °K, 30 °K et finalement jusqu'à 26 °K, cette température étant inférieure à la température de liquéfaction. 18 désigne l'échangeur de chaleur pour le sous-refroidissement jusqu'à 22 °K, après quoi le liquide subit une détente à travers la vanne 19 jusqu'à 1,5 atmosphère et est recueilli dans un récipient 20.

Dans le circuit de refroidissement, l'hydrogène à 3,5 atmosphères et à 300 °K environ, provenant du compresseur, est refroidi par le gaz de retour dans des échangeurs de chaleur 21, puis se détend à travers la turbine 22 à 2,5 atmosphères et est ainsi refroidi à 67,5 °K. Le fluide de refroidissement sous une pression de 2,5 atmosphères et à une température de 67,5 °K passe alors en parallèle à travers :

1° La turbine 11b, en s'en échappant à une pression comprise entre 1 et 1,5 atmosphère et à une température de 58 °K, pour traverser l'échangeur de chaleur 11 et revenir à l'échangeur de chaleur 21 à une température de 66 °K;

2° Le pré-refroidisseur 12a et la turbine 12b, en pénétrant dans celle-ci à une température de 58,2 °K et en s'en échappant à une température de 50 °K et sous une pression de 1 à 1,5 atmosphère, pour traverser l'échangeur de chaleur 12, duquel il revient au pré-refroidisseur 12a à une température de 56,7 °K. Après avoir traversé le pré-refroidisseur 12a, le fluide de refroidissement rejoint le courant de retour gagnant l'échangeur de chaleur 21 à 66 °K;

3° Le pré-refroidisseur 12a et la turbine 13b, en pénétrant dans celle-ci à une température de 51,2 °K et en s'en échappant à une température de 44 °K et sous une pression de 1 à 1,5 atmosphère, après quoi le fluide de refroidissement traverse l'échangeur de chaleur 13 et retourne au pré-refroidisseur 13a à une température de 49,5 °K, puis gagne



le courant de retour se dirigeant vers l'échangeur de chaleur 21 à 66 °K;

4° Le pré-refroidisseur 14a et la turbine 14b, en pénétrant dans celle-ci à une température de 41,3 °K et en s'en échappant à une température de 38 °K et sous une pression de 1 à 1,5 atmosphère, le fluide de refroidissement traversant alors l'échangeur de chaleur 14 et s'en échappant à une température de 42,7 °K, pour rejoindre en empruntant le pré-refroidisseur 14a le courant de retour se dirigeant vers l'échangeur de chaleur 21 à 66 °K;

5° Le pré-refroidisseur 15a et la turbine 15b, en pénétrant dans celle-ci à une température de 38,5 °K et en s'en échappant à une température de 33 °K et sous une pression de 1 à 1,5 atmosphère, le fluide de refroidissement traversant alors l'échangeur de chaleur 15 et s'en échappant à une température de 37 °K, pour rejoindre par le pré-refroidisseur 15a le courant de retour gagnant l'échangeur de chaleur 21 à 66 °K;

6° Le pré-refroidisseur 16a et la turbine 16b dans laquelle il pénètre à une température de 32,7 °K et dont il s'échappe à une température de 28 °K et sous une pression de 1 à 1,5 atmosphère, le fluide de refroidissement traversant alors l'échangeur de chaleur 16 et le quittant à une température de 31,5 °K pour rejoindre en passant par le pré-refroidisseur 16a le courant de retour gagnant l'échangeur de chaleur 21 à 66 °K;

7° Le pré-refroidisseur 17a et la turbine 17b, dans laquelle il pénètre à une température de 30 °K et dont il s'échappe à une température de 25,5 °K et sous une pression de 1 à 1,5 atmosphère, le fluide de refroidissement traversant alors l'échangeur de chaleur 17, dont il s'échappe à une température de 29 °K, et rejoignant en empruntant le pré-refroidisseur 17a au courant de retour se dirigeant vers l'échangeur de chaleur 21 à 66 °K;

8° Le pré-refroidisseur 18a et la turbine 18b, dans laquelle il pénètre à une température de 26 °K et dont il s'échappe à une température de 21,8 °K et sous une pression de 1 à 1,5 atmosphère, le fluide de refroidissement traversant alors l'échangeur de chaleur 18 et le quittant à une température de 25 °K pour rejoindre en empruntant le pré-refroidisseur 18a le courant de retour gagnant l'échangeur de chaleur 21 à 66 °K.

Si l'on examine maintenant la figure 2, on voit que 29 et 30 représentent les étages préliminaires de réfrigération par l'ammoniac et l'azote en vue de refroidir l'hydrogène à 16 atmosphères jusqu'à 70 °K. Les échangeurs de chaleur 31, 32, 33, 34 et 35 et les circuits de refroidissement associés comprenant la turbine 31b, la turbine 32b, la turbine 33b, la turbine 34b et la turbine 35b respectivement, agissent de façon analogue aux échangeurs de chaleur 11 à 15 du système représenté dans la figure 1, sauf que les échangeurs de chaleur 31 à 35 sont

refroidis en outre par un courant d'hydrogène en retour qui n'est pas liquéfié au cours de la phase de détente subséquente. Par ailleurs, les pré-refroidisseurs 32a, 33a, 34a et 35a sont montés dans le présent cas en série, les charges fournies aux turbines 32b à 35b étant évacuées en parallèle. L'hydrogène sous une pression égale à 16 atmosphères sortant de l'échangeur de chaleur 35 à une température de 35 °K traverse l'échangeur de chaleur 36 et se détend ensuite à travers la vanne 37, dans la chambre 38, pour permettre d'utiliser l'effet Joule-Thomson. Grâce à ce moyen, il est refroidi jusqu'à 22 °K et 41,5 % environ sont liquéfiés. Le gaz non liquéfié revient à travers l'échangeur de chaleur 36, puis en série à travers les échangeurs de chaleur 35 à 31 et à travers les étages de refroidissement 30 et 29.

Le gaz de refroidissement qui a traversé les échangeurs de chaleur 39 et la turbine 40 sous une pression égale à 2,5 atmosphères se détend alors en passant à travers chacune des turbines 31b, 32b, 33b, 34b et 35b, jusqu'à 1,1 atmosphère.

La température aux différents points du système est indiquée sur la figure 2.

Dans la figure 3, 41 et 42 représentent les stades de réfrigération préliminaires faisant intervenir l'ammoniac et l'azote pour refroidir l'hélium à 20 atmosphères jusqu'à 70 °K. Les échangeurs de chaleur 43, 44, 45, 46 et 47 et leurs circuits de refroidissement associés, comprenant la turbine 43b, la turbine 44b, la turbine 45b, la turbine 46b et la turbine 47b respectivement fonctionnent de façon analogue aux échangeurs de chaleur 31 et 35 du système représenté dans la figure 2, mais les échangeurs de chaleur 43 à 47 sont refroidis additionally par un courant d'hélium en retour qui n'est pas liquéfié dans la phase de détente subséquente. Les pré-refroidisseurs 44a, 45a, 46a et 47a sont montés en parallèle et sont reliés aux turbines associées comme dans le système que montre la figure 1. L'hélium est refroidi dans les échangeurs de chaleur respectifs 43, 44, 45 et 46 à 47 °K, 32,5 °K, 23 °K et 17,5 °K et sort de l'échangeur de chaleur 47 à une température de 15 °K; il passe ensuite à travers l'échangeur de chaleur 48, dans lequel il est refroidi davantage par l'hélium gazeux en retour provenant du courant de gaz principal, jusqu'à 7 °K, et il subit ensuite une détente à travers la vanne 49, vers la chambre 50, pour permettre d'utiliser l'effet Joule-Thomson. La pression de l'hélium tombe à 1,5 atmosphère et sa température à 4,4 °K. 11 % du courant d'hélium sont liquéfiés. L'hélium gazeux non liquéfié revient à travers l'échangeur de chaleur 48 pour y assurer le refroidissement, puis il repasse successivement à travers les échangeurs de chaleur 47 à 43 et les étages de refroidissement 42 et 41.

Le courant d'hélium servant au refroidissement

se trouve à une pression de 10 atmosphères et est refroidi depuis la température ambiante jusqu'à 74 °K dans l'échangeur de chaleur 51, par le courant en retour de gaz de refroidissement provenant de tous les étages de refroidissement; il se détend alors à 7 atmosphères en traversant la turbine 51. Le courant d'hélium servant au refroidissement, à une pression de 7 atmosphères et à une température de 70 °K, traverse les cinq étages en parallèle décrits ci-après :

1° La turbine 43b, qu'il quitte à une pression de 1,2 atmosphère et à une température de 46,1 °K pour passer à travers l'échangeur de chaleur 43 et revenir ensuite à l'échangeur de chaleur 52 à une température de 69 °K;

2° Le pré-refroidisseur 44a, pour pénétrer dans la turbine 44b à 47 °K et en sortir à une température de 31,5 °K et sous une pression de 1,2 atmosphère, afin de traverser l'échangeur de chaleur 44, duquel il revient au pré-refroidisseur 44a à une température de 46,1 °K. Le fluide de refroidissement revient du pré-refroidisseur 40a à l'échangeur de chaleur 52 à une température de 69 °K;

3° Le pré-refroidisseur 45a, pour pénétrer dans la turbine 45b à 32 °K et en sortir à une température de 22,5 °K et sous une pression égale à 1,2 atmosphère, afin de traverser l'échangeur de chaleur 45, duquel il revient au pré-refroidisseur 45a à une température de 31 °K. Le fluide de refroidissement revient du pré-refroidisseur 45a à l'échangeur 52 à une température de 69 °K;

4° Le pré-refroidisseur 46a, pour pénétrer dans la turbine 46b à une température de 23,5 °K et en sortir à une température de 16,5 °K et sous une pression égale à 1,2 atmosphère, afin de traverser l'échangeur de chaleur 46, duquel il revient au pré-refroidisseur 46a à une température de 22,5 °K. Le fluide de refroidissement revient du pré-refroidisseur 46a à l'échangeur de chaleur 52 à une température égale à 69 °K;

5° Le pré-refroidisseur 47a, pour pénétrer dans la turbine 47b à 18,5 °K et en sortir à une température de 13,5 °K et sous une pression de 1,2 atmosphère, afin de traverser l'échangeur de chaleur 47, duquel il revient au pré-refroidisseur 47a à une température de 17 °K. Le fluide de refroidissement revient du pré-refroidisseur 46a à l'échangeur de chaleur 52 à une température de 69 °K.

Si l'on examine maintenant la figure 4, on voit que 53 et 54 représentent les étages préliminaires au cours desquels l'ammoniac et l'azote sont employés pour refroidir le courant d'hydrogène à liquéfier, sous une pression égale à 10 atmosphères, jusqu'à 70 °K, tandis que 55, 56 et 57 désignent les échangeurs de chaleur dans lesquels un refroidissement plus prononcé est effectué par étages jusqu'à 47 °K, 31,3 °K, et finalement jusqu'à 22 °K, étage auquel l'hydrogène est liquéfié. 58 désigne

la vanne de détente dans laquelle la pression tombe de 10 atmosphères à 1,5 atmosphère, le gaz liquéfié étant recueilli dans le récipient 59.

Dans le circuit de refroidissement, l'hélium sous une pression de 10 atmosphères et à une température de 303 °K provenant du compresseur est refroidi par le gaz de retour dans l'échangeur de chaleur 60 et se détend jusqu'à 7 atmosphères en traversant la turbine 61. Le courant d'hélium formant fluide de refroidissement, sous une pression de 7 atmosphères et une température de 70 °K, passe à travers les trois étages en parallèle décrits ci-après :

1° La turbine 55b, qu'il quitte à 1,2 atmosphère et à une température de 46,1 °K pour traverser l'échangeur de chaleur 55 et revenir ensuite à l'échangeur de chaleur 60 à une température de 69 °K;

2° Le pré-refroidisseur 56a, pour pénétrer dans la turbine 56b à 43 °K et en sortir à une température de 28,5 °K et sous une pression de 1,2 atmosphère, afin de traverser l'échangeur de chaleur 56, duquel il revient au pré-refroidisseur 56a à une température de 42 °K. Le fluide de refroidissement reflue du pré-refroidisseur 56a vers l'échangeur de chaleur 60 à une température de 69 °K;

3° Le pré-refroidisseur 57a, pour pénétrer dans la turbine 57b à 29,6 °K et en sortir à une température de 21 °K et sous une pression égale à 1,2 atmosphère, afin de traverser l'échangeur de chaleur 57, duquel il reflue vers le pré-refroidisseur 57a à une température de 28,5 °K. Le fluide de refroidissement reflue du pré-refroidisseur 57a vers l'échangeur de chaleur 60 à une température de 69 °K.

Les turbines de détente prévues dans les systèmes de refroidissement décrits dans ce qui précède sont de préférence du type axial, tandis que les échangeurs de chaleur sont de préférence du type à plaques à ailettes.

Toutes les pressions indiquées dans ce qui précède sont des pressions absolues.

Les modalités de mise en œuvre du procédé peuvent être modifiées, sans s'écarter de l'invention, dans le domaine des équivalences techniques.

#### RÉSUMÉ

1° Procédé de refroidissement d'un gaz jusqu'à une température nettement inférieure à 70 °K consistant à faire passer le gaz, sous une pression élevée et à une température de l'ordre de 65° à 70 °K, à travers plusieurs zones de refroidissement en série et à refroidir le gaz, dans chaque zone, par échange thermique indirect avec un courant de gaz de refroidissement ayant un point d'ébullition ne dépassant pas celui du gaz en cours de refroidissement et qui a été finalement refroidi à la température requise par détente à travers une turbine.

2° Modes de réalisation de ce procédé, présentant les particularités suivantes, considérées séparément ou collectivement :

a. Le gaz de refroidissement est constitué par un courant séparé du même gaz que celui qui est en cours de refroidissement;

b. La température du courant de gaz de refroidissement s'échappant de chaque zone est inférieure à celle du courant de gaz pénétrant dans la turbine associée à cette même zone;

c. Les courants de gaz de refroidissement se détendent à travers les turbines depuis une pression inférieure à celle du gaz soumis au refroidissement;

d. Le courant de gaz de refroidissement utilisé pour la seconde zone et chacune des zones suivantes est refroidi par le gaz de refroidissement en retour provenant de cette zone, après quoi il est détendu à travers la turbine associée à ladite zone;

e. Les courants de gaz de refroidissement des zones de refroidissement sont prélevés en parallèle à un courant de gaz de refroidissement principal et, après avoir assuré le refroidissement, ils sont recommandés et ramenés au point de départ en vue de subir une nouvelle compression et un refroidissement;

f. De l'hydrogène à une pression de 2 à 12,5 atmosphères et à une température de l'ordre de 65° à 70 °K est refroidi jusqu'à sa température de liquéfaction ou au-dessous de cette dernière;

g. De l'hydrogène à une pression allant de 2 à 20 atmosphères et à une température de l'ordre de 65° à 70 °K est refroidi jusqu'à une température supérieure à sa température de liquéfaction, puis est ensuite refroidi davantage par détente en utilisant l'effet Joule-Thomson, afin de liquéfier une partie de cet hydrogène;

h. Un étage de refroidissement final supplémentaire est prévu avant la détente et la liquéfaction de l'hydrogène soumis au refroidissement, le fluide de refroidissement utilisé dans cet étage final étant constitué par de l'hydrogène non liquéfié revenant de la phase de liquéfaction;

i. Le gaz de refroidissement est de l'hydrogène ou de l'hélium;

j. De l'hélium sous une pression de 5 à 30 atmosphères et à une température de l'ordre de 65 à 70 °K est refroidi jusqu'à une température supérieure à sa température de liquéfaction en utilisant l'hélium comme gaz de refroidissement, après quoi il est refroidi davantage par détente en utilisant l'effet Joule-Thomson, pour liquéfier une partie de l'hélium;

k. Un étage de refroidissement final supplémentaire est prévu avant la détente et la liquéfaction de l'hélium soumis au refroidissement, le fluide de refroidissement utilisé, dans cet étage final, étant de l'hélium non liquéfié revenant de la phase de liquéfaction;

l. La température du gaz à refroidir est abaissée à 65 °K-70 °K par une réfrigération effectuée successivement avec de l'ammoniac et avec de l'azote;

m. Les turbines utilisées dans le système sont du type axial.

3° Hydrogène liquide résultant de la mise en œuvre du procédé selon 1° ou 2°.

4° Hélium liquide résultant de l'application de ce procédé.

Société dite :  
PETROCARBON DEVELOPMENTS LIMITED

Par procuration :  
Cabinet MAULVAULT

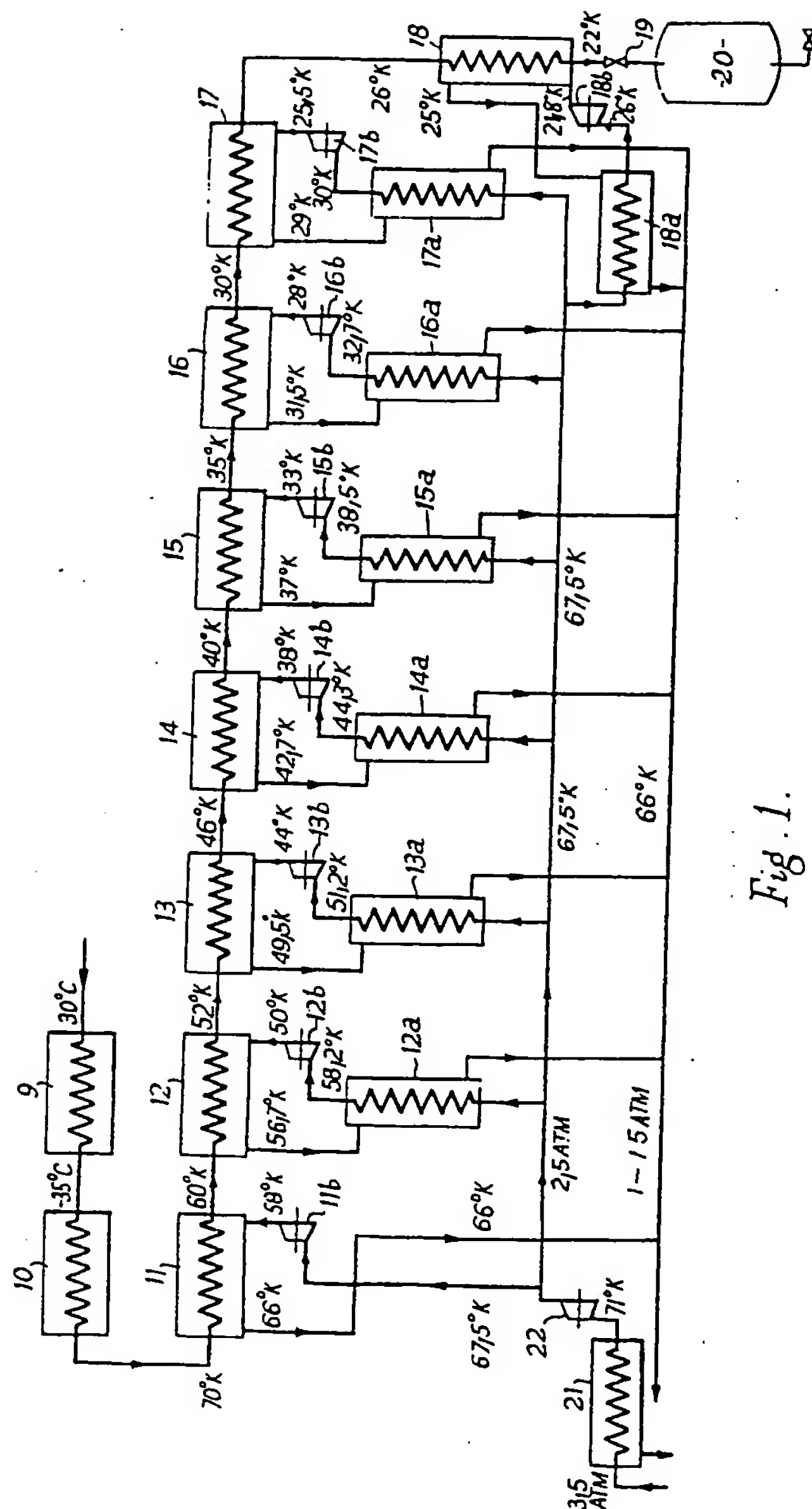


Fig. 1.

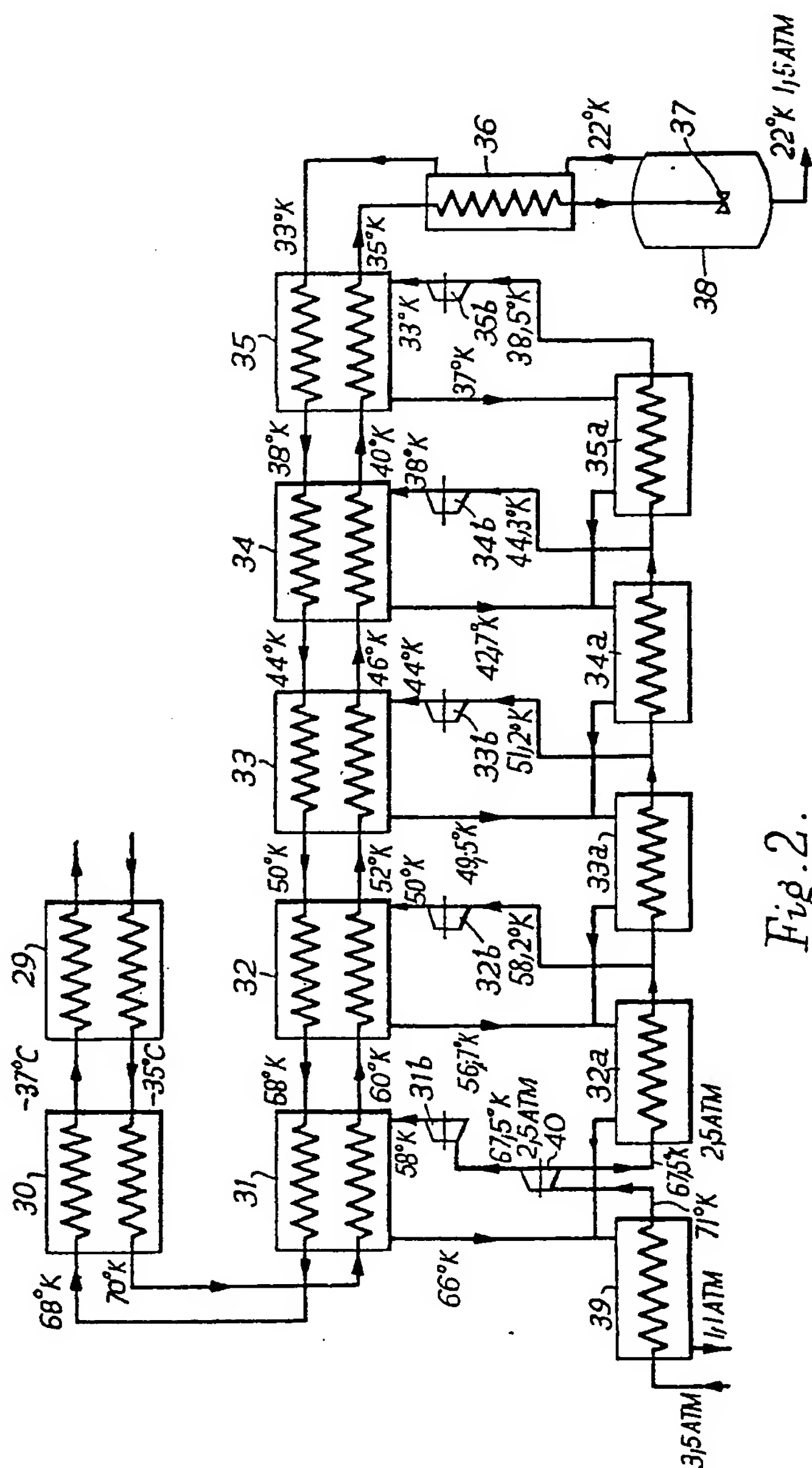
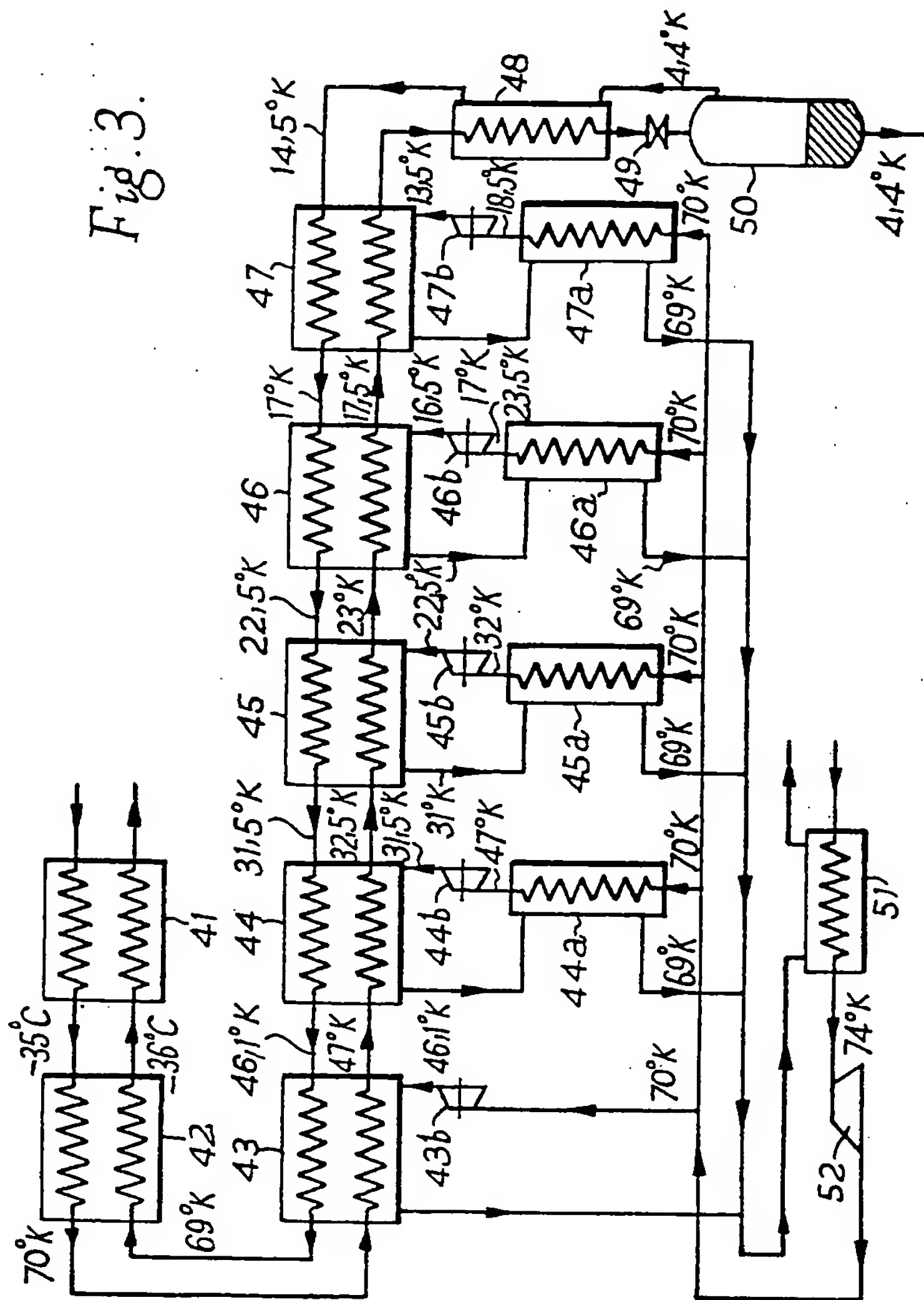


Fig. 2.



Fig. 3.



Petrocarbon Developments Limited

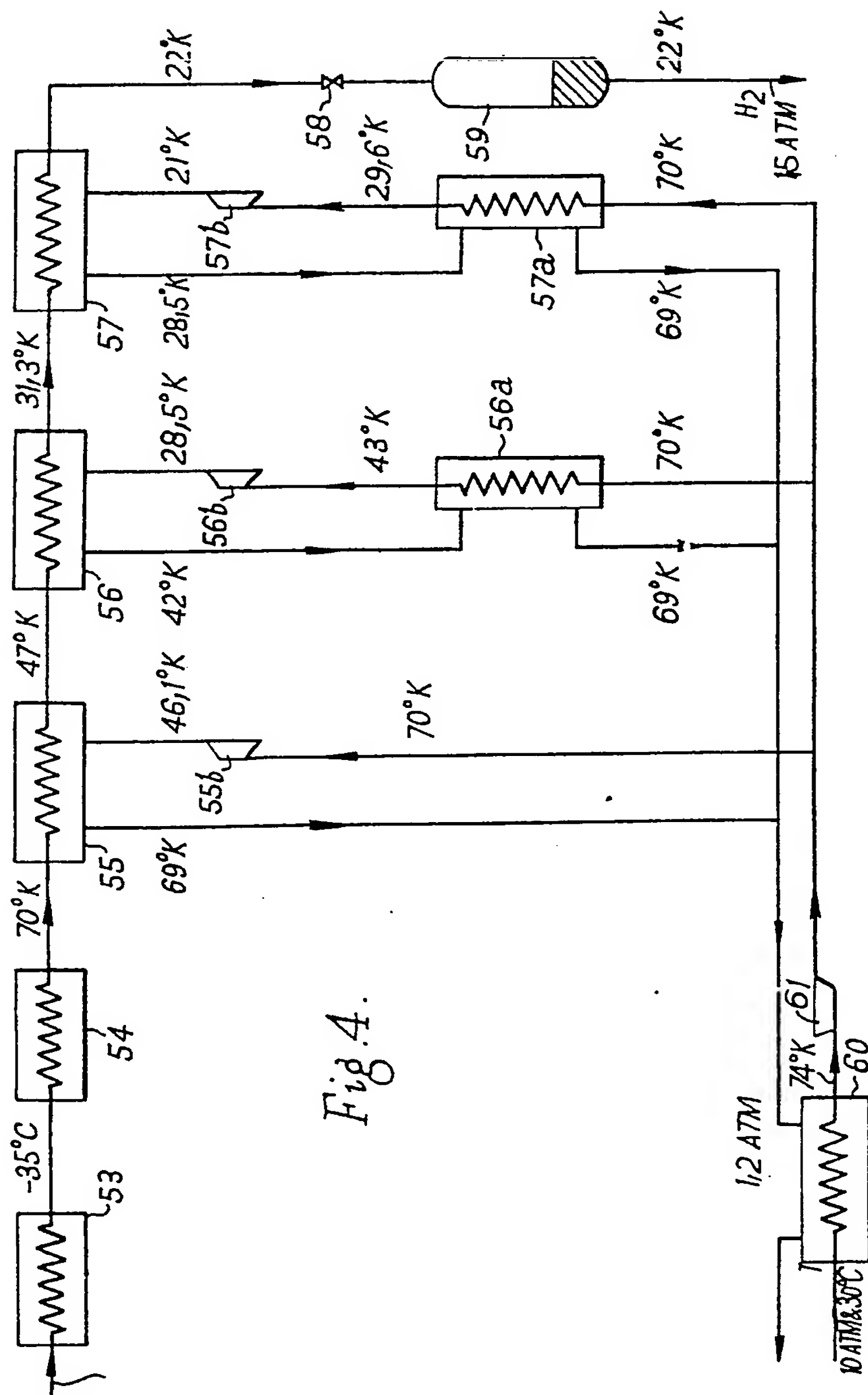


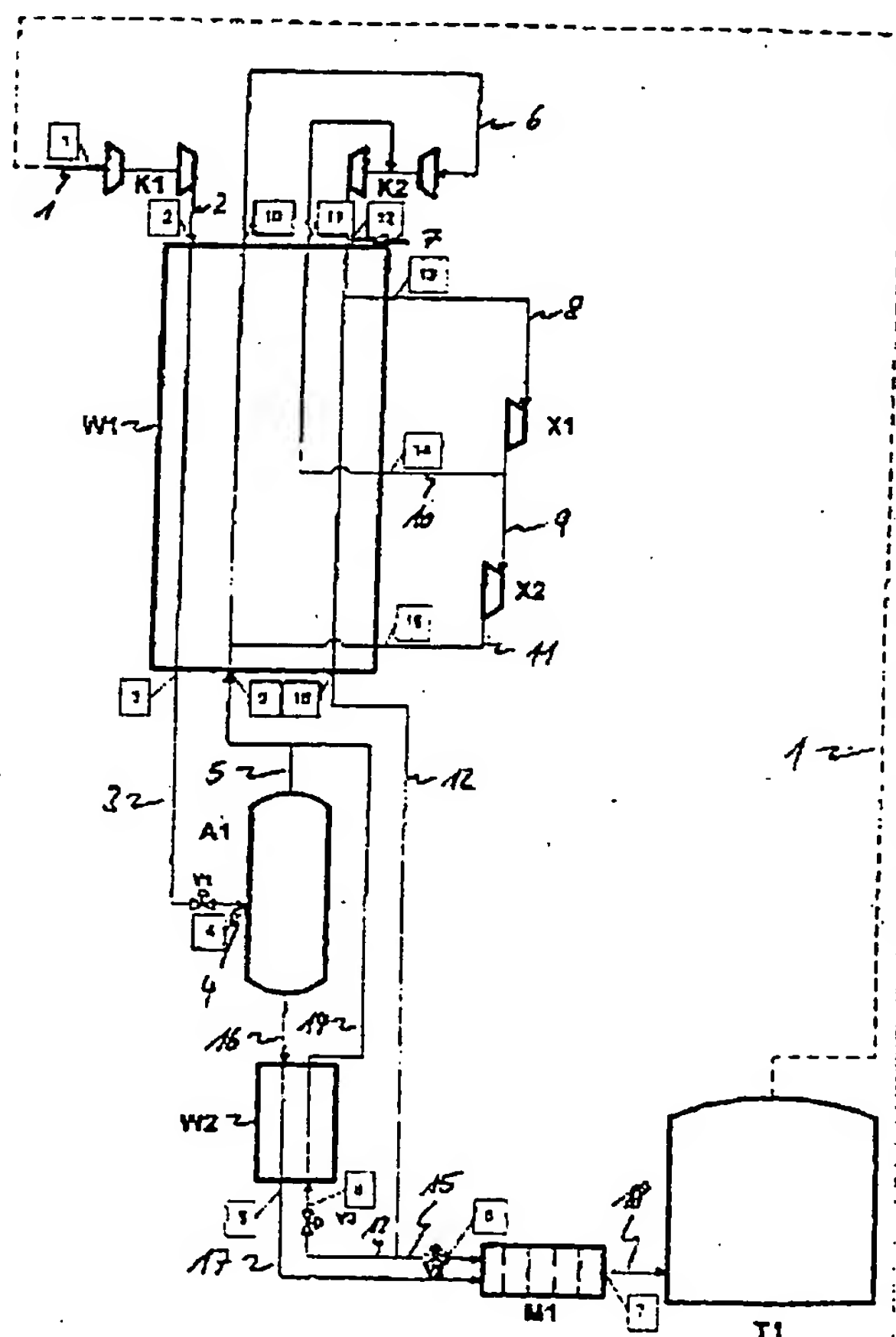
Fig. 4.

# Liquefaction of two-component gas mixture comprises separating mixture into high- and low- boiling fractions, with subsequent cooling and mixing stages avoiding boil-off gases

**Patent number:** DE10108905  
**Publication date:** 2002-09-05  
**Inventor:** GREFE ALF (DE)  
**Applicant:** LINDE AG (DE)  
**Classification:**  
- International: F25J1/02  
- european: F25J1/00  
**Application number:** DE20011008905 20010223  
**Priority number(s):** DE20011008905 20010223

## Abstract of DE10108905

A mixture is separated into two fractions with boiling points above and below that of a feedstock, at the same pressure. The higher-boiling fraction is cooled, liquefying it at the final pressure of the process. The lower-boiling fraction is cooled, such that when combined with the higher-boiling fraction, the result is completely liquid. As coolant for the coolant circuit(s), either a side stream of the lower-boiling fraction; or with two coolant circuits; a side stream of the lower-boiling fraction and a side stream of the gas mixture to be liquefied are used. Preferred Features: In addition, the preferably liquefied, higher-boiling fraction and the preferably liquefied lower-boiling fraction are then combined, to exist in the liquid form. Separation of the mixture to be liquefied into lower- and higher-boiling fractions is effected in any separation or fractionation process, preferably with throttling, permeation and/or rectification. Final combination takes place before supply into a storage tank. In the case of supply of fractions to a storage tank first, the preferably liquefied higher-boiling fraction is supplied to it in the supercooled state and the lower-boiling and the higher-boiling fractions are so cooled before supply, that during their combination, no boil-off results. Cooling of the lower-boiling side stream is by adequate compression, followed by expansion, resulting in the liquid phase following combination. The preferably liquefied higher-boiling fraction before combination with the lower-boiling fraction, or before supply into the storage tank, is super-cooled. This takes place in heat exchange with at least one side stream of the lower-boiling fraction. Before mixing or before supply into the storage tank, the preferably liquefied lower-boiling fraction is subcooled with the higher-boiling fraction. Supercooling is sufficient to assure that no gases are evolved on mixing. Additional processes based on the



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



foregoing principles are carried out.

---

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

THIS PAGE BLANK (USC720)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)